



**PCT**  
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro  
**INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)**

<b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> :</b>  <b>H01M</b>	<b>A2</b>	<b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:</b> <b>WO 00/14816</b>  <b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 16. März 2000 (16.03.00)		
<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"><tr><td style="width: 50%; vertical-align: top; padding: 5px;"><b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/DE99/02776  <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 2. September 1999 (02.09.99)  <b>(30) Prioritätsdaten:</b> 198 40 517.0      4. September 1998 (04.09.98)      DE  <b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> KOSCHANY, Petra [DE/DE]; Pfarrweg 5, D-94121 Salzweg (DE).  <b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> ROSENMAYER, Volker [DE/DE]; Gaisbergstrasse 32, D-83416 Saaldorf-Surheim (DE).</td><td style="width: 50%; vertical-align: top; padding: 5px;"><b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).  <b>Veröffentlicht</b> <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i></td></tr></table>			<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/DE99/02776  <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 2. September 1999 (02.09.99)  <b>(30) Prioritätsdaten:</b> 198 40 517.0      4. September 1998 (04.09.98)      DE  <b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> KOSCHANY, Petra [DE/DE]; Pfarrweg 5, D-94121 Salzweg (DE).  <b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> ROSENMAYER, Volker [DE/DE]; Gaisbergstrasse 32, D-83416 Saaldorf-Surheim (DE).	<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).  <b>Veröffentlicht</b> <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i>
<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/DE99/02776  <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 2. September 1999 (02.09.99)  <b>(30) Prioritätsdaten:</b> 198 40 517.0      4. September 1998 (04.09.98)      DE  <b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> KOSCHANY, Petra [DE/DE]; Pfarrweg 5, D-94121 Salzweg (DE).  <b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> ROSENMAYER, Volker [DE/DE]; Gaisbergstrasse 32, D-83416 Saaldorf-Surheim (DE).	<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).  <b>Veröffentlicht</b> <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i>			
<b>(54) Title:</b> GAS DIFFUSION STRUCTURE PERPENDICULAR TO THE MEMBRANE OF POLYMER-ELECTROLYTE MEMBRANE FUEL CELLS  <b>(54) Bezeichnung:</b> GASDIFFUSIONSSTRUKTUR SENKRECHT ZUR MEMBRAN VON POLYMERELEKTROLYT-MEMBRAN BRENNSTOFFZELLEN  <b>(57) Abstract</b>  All gas diffusion structures known so far cannot guarantee water balance compensation in the fuel cell, protection against drying and prevention of water deposits while simultaneously ensuring even distribution of reaction gases. In the gas diffusion structure according to the invention, a gradient is produced in gas permeability perpendicular to the membrane by a stratified system. This guarantees constant and optimal humidification in all points of the membrane by the formed product water at appropriate operating temperature and appropriate stoichiometry of the reactants. Additional humidification systems can thus be discarded.  <b>(57) Zusammenfassung</b>  Mit allen bisher bekannten Gasdiffusionsstrukturen kann ein Ausgleich der Wasserbilanz der Brennstoffzelle, ein Schutz vor Austrocknung und eine Verhinderung von Wasserablagerungen bei gleichzeitiger gleichmäßiger Verteilung der Reaktionsgase nicht gewährleistet werden. Mit der erfindungsgemäßen Gasdiffusionsstruktur wird durch Schichtaufbau ein Gradient in der Gasdurchlässigkeit senkrecht zur Membran erzeugt. Dadurch wird bei geeigneter Betriebstemperatur und geeigneter Stoichiometrie der Reaktanden gewährleistet, daß die Befeuchtung der Membran durch das gebildete Produktwasser an jeder Stelle konstant und optimal ist. Somit kann auf zusätzliche Befeuchtungssysteme verzichtet werden.				

# LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland		
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

## Gasdiffusionsstruktur senkrecht zur Membran von Polymerelektrolyt-Membran Brennstoffzellen

- 5 Die vorliegende Erfindung betrifft eine Gasdiffusionsstruktur senkrecht zur Membran von Polymerelektrolyt-Membran (PEM)-Brennstoffzellen die mit den Reaktionsgasen Wasserstoff und Sauerstoff oder Luft betrieben wird und ein Verfahren zu Ihrer Herstellung.
- 10 Eine PEM-Brennstoffzelle besteht von außen nach innen angeordnet aus zwei Stromableiterplatten, zwei Gasdiffusionsschichten, zwei den Katalysator enthaltenden Elektroden und einer Ionenaustauschermembran, die zwischen den Elektroden liegt und mit diesen die Membran-Elektroden-Einheit bildet (im folgenden MEA - Membrane Electrode Assembly ). Die Strom-
- 15 ableiterplatten enthaltenen typischerweise zur MEA parallel verlaufende Einrichtungen zur Zuführung und Verteilung der Reaktanden über die gesamte Zellfläche Da die elektrische Spannung einer einzelnen Zelle für praktische Anwendungen viel zu niedrig ist, müssen eine Mehrzahl solcher Zellen in Reihe geschaltet werden. Bei dem sich daraus ergebenden Brennstoffzellenstapel bzw. -stack werden die aufeinander treffenden Stromableiterplatten durch sog. Bipolarplatten ersetzt, deren Funktion in der Stromdurchleitung durch den Stack und der Trennung der Reaktionsgase liegt.
- 20

- Durch Zuführung von Wasserstoff als typisches Reaktionsgas an die An-
- 25 odenseite der Brennstoffzelle, welche sich in einem gegen die Umgebung abgedichteten Gasraum befindet, werden in der Anodenkatalysatorschicht Kationen erzeugt, die durch die Ionenaustauschermembran diffundieren. Gleichzeitig werden die ebenfalls erzeugten Elektronen durch einen äußeren Stromkreis mit Lastwiderstand von der Anode zur Kathode geführt. Das zu-
- 30 geführte Oxidationsmittel Sauerstoff, wobei bevorzugt die Sauerstoffkonzentration in der Luft genügt, wird nun in der Kathode durch Aufnahme der

Wasserstoffionen und Elektronen reduziert. Als Reaktionsprodukt entsteht Wasser. Die Reaktionsenthalpie wird in Form von elektrischer Energie und Abwärme frei.

- 5 Ein wesentliches Problem dabei ist der Wasserhaushalt der Brennstoffzelle. Die Membran arbeitet nur dann unter optimalen Bedingungen, d.h. sie leitet die Wasserstoffionen optimal, wenn sie ausreichend Feuchtigkeit enthält. Sinkt ihr Feuchtigkeitsgehalt zu stark ab, steigt der Innenwiderstand der Zelle aufgrund des erhöhten Membranwiderstandes beträchtlich an, wodurch
- 10 die Leistung sinkt. Zum optimalen Zellbetrieb bedarf es daher bei gegebener Temperatur an jeder Stelle der Membran einer Luftfeuchtigkeit von nahezu 100 Prozent. Strömt das Kathodengas Luft durch die Verteilerkanäle der Stromableiterplatten und diffundiert durch die Gasdiffusionsschicht, hat es beim Eintritt in den Gasraum einen niedrigen Partialdruck an Wasserdampf,
- 15 beim Austritt einen hohen, da Sauerstoff an der Kathode zu Wasser reagiert. Der durch die Wasserstoffpartialdruckdifferenzen zwischen Membranoberfläche und Verteilerkanal hervorgerufene Diffusionsstrom trocknet die Membran am Einlaß des Kathodengases aus, am Auslaß entstehen dagegen möglicherweise Wasserablagerungen in der Diffusionsschicht. Bei gegebener
- 20 Betriebstemperatur bedarf es demnach zum Ausgleich der Wasserbilanz der Membran einer über die Membranoberfläche möglichst konstanten Zusammensetzung des Kathodengases und auch des Anodengases.

- Dieses Problem wird herkömmlich nur teilweise durch externe Befeuchtungssysteme, teils kombiniert mit dem Kühlsystem, gelöst, die unter zumindest
- 25 intervallweiser Messung der Membranfeuchte die Wasserbilanz der Zelle ausgleichen. Nachteilig an diesen Befeuchtungssystemen ist die zusätzliche Belastung des Brennstoffzellensystems mit Eigenenergieverbrauch, und Gewicht, was vor allem für die Anwendung in kleinen, portablen Systemen
- 30 nicht wünschenswert ist und mit Kosten, welche die Wettbewerbsfähigkeit der Brennstoffzelle mit herkömmlichen Energieversorgungssystemen

schwächt. Desweiteren bleibt noch immer obiges Problem der gleichmäßigen Gasverteilung an der Oberfläche der Zellmembran. Ziel ist es eine Brennstoffzelle ohne Befeuchtung der Reaktionsgase zu betreiben.

- 5 Eine Lösung der Problematik einer gleichmäßigen Verteilung der Reaktionsgase zeigt US - PS 5,641,586. Zwischen die Elektrodenkatalysatorschicht und die Stromableiterplatte werden zwei Schichten angeordnet; an die MEA angrenzend eine microporöse, hydrophobe Gasdiffusionsschicht und angrenzend an die Stromableiterplatte ein macroporöses, hydrophiles Flow
- 10 Field. Das Flow Field besitzt zwei, ineinandergreifende Kanalstrukturen einerseits zur Verteilung der Reaktionsgase an den Gasdiffusionsschichten, andererseits zum Abtransport der Reaktionsprodukte. Zwar können so die Reaktanden gleichmäßig über die Oberfläche der Membran verteilt werden, auch wird eine Wasserablagerung durch die Hydrophobierung vermieden,
- 15 allerdings besteht nach wie vor die Gefahr der Austrocknung, da die Gasdiffusionsschicht einen Austritt des Reaktionsproduktes auch bei Unterversorgung der Membran mit Feuchtigkeit nicht verhindert.

- Eine Möglichkeit, den Wasserhaushalt einer Brennstoffzelle auf konstantem,
- 20 optimalen Niveau zu halten zeigt DE - OS 14 96 172, worin einer Wasserstoffdiffusionselektrode aus einer Paladium/Gold-Legierung verwendet wird, die Wasserstoffdurchlässig ist aber den Durchtritt von Flüssigkeiten verhindert. Allerdings eignet sich diese nicht für die Anwendung an der Kathode, die vorwiegend das Problem des Ausgleichs der Wasserbilanz aufweist, da
- 25 diese Elektrode für Sauerstoff undurchlässig ist.

- Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, die herkömmliche Gasdiffusionsschicht für PEM-Brennstoffzellen durch eine Gasdiffusionsstruktur, deren Diffusionseigenschaft so bemessen ist, daß die Wasserbilanz an der
- 30 MEA immer ausgeglichen ist, zu ersetzen.

Weiterhin ist es Aufgabe der Erfindung, ein einfaches, kostengünstiges Verfahren zur Herstellung dieser Gasdiffusionsstruktur aufzuzeigen.

5 Diese Aufgaben werden erfindungsgemäß gelöst durch eine Gasdiffusionsstruktur, welche senkrecht zur Membran einen Gradient in der Gasdurchlässigkeit gemäß Anspruch 1 aufweist sowie ein Verfahren zur Herstellung der Gasdiffusionsstruktur gemäß Anspruch 11.

10 Die Zeichnung zeigt eine erfindungsgemäße Gasdiffusionsstruktur in ihrer bevorzugten Ausführungsform gemäß den Beispielen.

Die Gasdiffusionsstruktur (3 und 4) besteht im allgemeinen aus porösen, elektrisch leitfähigen Materialien, welche zur Erreichung eines Gradienten in der Gasdurchlässigkeit in ihrem Porenvolumen angepaßt werden muß. Dies  
15 kann schichtweise oder kontinuierlich erfolgen. Eine nahezu kontinuierliche Änderung könnte erreicht werden, wenn sehr viele, sehr dünne Schichten mit jeweils etwas unterschiedlichen Diffusionseigenschaften aneinandergesetzt werden, mindestens und im folgenden auch bevorzugt bedarf es jedoch zwei Schichten (3), (4) mit unterschiedlicher Gasdurchlässigkeit.

20

Die äußere Schicht (3), d.h. dieser Teil der Gasdiffusionsstruktur, der an die Stromableiterplatte (1) mit enthaltener Kanalstruktur (2) grenzt, besitzt bevorzugt ein relativ kleines Porenvolumen und damit einen hohen Diffusionswiderstand. Hingegen der innere Teil der Gasdiffusionsstruktur (4), d.h. der  
25 Teil der mit der den Katalysator enthaltenden Elektrode (5) in Berührung ist, weist ein relativ hohes Porenvolumen auf. Die Reaktionsgase können sich daher auch auf Distanzen die etwa in der Größenordnung der Stege der Stromableiterplatte (1) liegen (0.5-5 mm) durch Diffusion ausreichend gut innerhalb der Schicht (4) verteilen. Desweiteren ist die äußeren Schicht der  
30 orthogonalen Gasdiffusionsstruktur bevorzugt stärker hydrophob als die innere Schicht.

Diese zweischichtige Gasdiffusionsstruktur kann jedoch auch durch weitere Schichten mit jeweils unterschiedlichen Funktionen ergänzt werden. So kann es durchaus positiv sein, an die innere Schicht noch eine weitere, Schicht zwischen Katalysator und Schicht (4) hinzuzufügen. Die Aufgabe dieser-  
5 Schicht ist die oberflächliche Füllung und Glättung der meist groben Poren der Schicht (4) womit ein besserer Kontakt zwischen Gasdiffusionsstruktur und Elektrode hergestellt werden kann. Ein Verfahren zu ihrer Herstellung ist in Beispiel 3 beschrieben.

10

Weiterhin kann zwischen Schicht (3) und den Stegen der Stromableiterplatte eine weitere Schicht eingefügt werden. Ihre Aufgabe ist es den elektrischen Übergangswiderstand zur Kanalstruktur möglichst gering zu halten. Dazu könnte sie plastisch, oder elastisch verformbar sein, so daß die Maßtoleran-  
15 zen der Stromableiterplatten oder bei einer Anordnung in einem Brennstoffzellenstack die der Bipolarplatten ausgeglichen werden und eine Stromabnahme von den Gasdiffusionsstruktur gleichmäßig erfolgen kann.

Im folgenden soll nun die Funktionsweise der bevorzugt aus zwei Schichten  
20 (3 und 4) bestehenden, erfindungsgemäßen Gasdiffusionsstruktur dargelegt werden. Die einstellbaren Betriebsparameter einer Brennstoffzelle sind die Luftzahl bzw. die Wasserstoffstoichiometrie, der Betriebsdruck, der Wasserdampfgehalt der Reaktionsgase am Zelleintritt und die Betriebstemperatur. Letztere sollte so hoch als möglich gewählt werden, um ein kompaktes Kühl-  
25 system mit geringem Kühlmitteldurchsatz zu ermöglichen. Das einfachste denkbare Kühlsystem besteht nur aus einem Ventilator der eine für die Kühlung ausreichende Menge an Luft durch den Kathodenraum der Zelle oder des Stacks fördert. Der einstellbare Betriebsdruck sollte so gering als möglich gewählt werden, idealerweise sollte die Brennstoffzelle unter Umgebungs-  
30 druck betrieben werden. So können Energieverluste durch Kompres-

soren vermieden werden, wodurch auch eine Reduktion des Gewichts und der Kosten erfolgt.

Bei Betrieb unter diesen oder ähnlichen Bedingungen liegt der Schwerpunkt  
5 der Problematik einer ausgeglichenen Wasserbilanz nun vorwiegend nicht in  
der Wasserablagerung in den Poren der Gasdiffusionsstruktur, sondern in  
der Gefahr einer Austrocknung der Membran. Um diesem Vorzubeugen be-  
darf es, wie bereits geschildert, vor allem kathodenseitig einer näherungs-  
weise konstanten Gaszusammensetzung über der gesamten Oberfläche der  
10 Membran und einer näherungsweise konstanten Gaszusammensetzung in  
der Kanalstruktur der Stromableiterplatte. Dies wird erreicht durch Wahl ei-  
ner relativ großen Luftzahl (z.B. 8-70) durch die Kanäle (2) der Stromablei-  
terplatte (1). Die Veränderung der Gaszusammensetzung durch Entnahme  
von Sauerstoff und Abgabe von Wasserdampf durch die Zelle sind dann  
15 vernachlässigbar. Der Diffusionswiderstand der Schicht (3) der erfindungs-  
gemäßen Gasdiffusionsstruktur muß nun so beschaffen sein daß der bei  
einer gewünschten Betriebstemperatur auftretende Gradient im Wasser-  
dampfpartialdruck zwischen der wohlbefeuchteten Membran und dem Gas  
im Kathodenraum einen Wasserdampfdiffusionsstrom verursacht der gerade  
20 das gebildete Produktwasser abführt. Die wesentlichen Sauerstoff und Was-  
serdampfgradienten treten somit nicht wie üblich parallel sondern senkrecht  
zur Oberfläche der Membran (6) auf. Die Betriebsbedingungen sind damit  
über die gesamte Membranoberfläche konstant. Die Schicht (4) hat die Auf-  
gabe die Gase im Bereich der Stege wo der Diffusionsstrom unterbrochen ist  
25 gleichmäßig zu verteilen.

Wird eine relativ geringe Luftzahl gewünscht bei der sich Änderungen in der  
Zusammensetzung des Kathodengases auf dem Weg durch die Zelle be-  
merkbar machen so muß der Diffusionswiderstand der Schicht (3) diesen  
30 Verhältnissen angeglichen werden. Schicht (3) muß im Bereich des Gasein-  
tritts mit höherem Diffusionswiderstand ausgeführt werden als im Bereich



des Gasaustritts. Ebenso kann auf diese Art und Weise Leistungsminderung durch Unterschiede in der Betriebstemperatur innerhalb einer Zelle durch Anpassung des Diffusionswiderstands vermieden werden.

Die erfindungsgemäße Gasdiffusionsstruktur kann nicht nur wie hier exemplarisch beschrieben an der Kathode vorteilhaft eingesetzt werden sondern auch an der Anode., insbesondere bei Betrieb der Zelle mit unbefeuchtetem Wasserstoff.

Die Herstellung dieser orthogonalen Gasdiffusionsstruktur mit einem Gradienten in der Gasdurchlässigkeit wird im folgenden beispielhaft beschrieben:

#### **Beispiel 1:**

Der Gradient in der Gasdurchlässigkeit senkrecht zur Membran (6) wird durch Heißpressen einer Folie aus einem thermoplastischen Kunststoff (3) auf ein bezüglich der Diffusionseigenschaften homogenes Kohlefaserpapier (4) erreicht. Das thermoplastische Material (3) verteilt sich durch das Heißpressen in den Poren nahe einer Oberfläche des Kohlefaserpapiers (4) und verstopft diese teilweise. Die elektrische Leitfähigkeit senkrecht zur Schicht geht dadurch erstaunlicherweise nicht verloren, da die Kohlefasern die Folie durchdringen und der elektrische Strom somit wieder bis zur Oberfläche gelangt.

Das Kohlefaserpapier (4) besitzt anfangs bevorzugt ein Porenvolumen von mehr als 50% und besonders bevorzugt mehr als 70%. Es kann vor der Weiterverarbeitung mit Polytetrafluorethylen (PTFE) (5-40 Massen%) nach dem in Beispiel 2 geschildertem Verfahren imprägniert werden. Die Dicke des Kohlefaserpapiers beträgt bevorzugt 0.1-1.5 mm und besonders bevorzugt 0.2 -0.4 mm.

Die thermoplastischen Folien (3) bestehen aus Gründen der Hydrophobizität bevorzugt aus fluorierten Kunststoffen wie z.B. die Produkte THV und FEP der Firma Dyneon. Es können aber auch konventionelle Thermoplaste wie z.B. Polypropylen eingesetzt werden. Die Dicke der Folie beträgt bevorzugt  
5 0.01 bis 0.2 mm. Über die Dicke der Folie und die Pressbedingungen kann der Diffusionswiderstand je nach Anwendungsfall in weiten Grenzen eingestellt werden.

Die Temperatur beim Heißpressen wird bevorzugt in einem Bereich knapp  
10 unter bis knapp über dem Schmelzbereich des verwendeten Thermoplasts gewählt. Die Pressdrücke betragen bevorzugt zwischen 10 und 100 bar, besonders bevorzugt zwischen 30 und 80 bar. Die Fasern des Kohlefaserpapiers sollten nach Möglichkeit durch das Pressen nicht brechen.

15 Die andere Oberfläche des Kohlefaserpapiers kann mit einer Elektrode aus katalysatorhaltigem Material (5) beschichtet werden oder direkt auf eine bereits katalysierte Membran gelegt oder gepresst werden. Im letzteren Fall ist es jedoch von Vorteil eine die Oberflächenrauhigkeit des Kohlefaserpapiers ausgleichende Glättungsschicht wie in Beispiel 3 beschrieben zu verwenden.  
20

### Beispiel 2:

25 Die mit Kunststoff teilweise verschlossenen Poren nach Beispiel 1 können auch durch Tränken eines Kohlefaserpapiers mit suspendierten Kunststoffen, bevorzugt PTFE oder THV, hergestellt werden. Da in einem einzigen Kohlefaserpapier durch Tränken nur äußerst kompliziert ein Gradient senkrecht zur Papierfläche erzeugt werden kann, müssen zwei Kohlefaserpapiere  
30 re verwendet werden, von denen das eine relativ viel Kunststoff enthält (3) und den Diffusionswiderstand bildet und das andere relativ viele offene Po-

- ren (4) enthält. Letzteres kann dann mit einer katalysatorhaltigen Elektro-  
denschicht oder mit einer die Rauigkeiten des Kohlepapiers ausgleichen-  
den Schicht, wie in Beispiel 3 dargelegt, versehen und entsprechend auf die  
nicht katalysierte oder katalysierte Membran gelegt oder gepresst werden.
- 5 Für beide Kohlefaserpapiere gelten die Spezifikationen aus Beispiel 1.

- Speziell für dieses Beispiel werden zwei Kohlefaserpapiere der Firma Toray  
(Japan) mit den Dicken 0.17 mm für das erste (3) und 0.35 mm für das  
zweite Kohlefaserpapier (4) verwendet. Das erste Papier wird durch Tränken  
10 in einer 60%igen wässrigen PTFE Dispersion und anschließendem Trock-  
nen bei erhöhter Temperatur teilweise mit Kunststoff gefüllt. Ein einziger  
Verfahrensschritt bestehend aus Tränken und Trocknen reicht aber im all-  
gemeinen nicht aus, um den gewünschten Diffusionswiderstand zu errei-  
chen. Die Wiederholung des Verfahrensschrittes bringt jedoch auch kaum  
15 zusätzliches Material in das Kohlefaserpapier ein, da der bereits eingela-  
gerte hydrophobe Kunststoff ein erneutes Eindringen der Dispersion in die  
Poren größtenteils verhindert. Höhere Füllgrade können nur durch aufeinander-  
folgende Vakuum- und Druckbehandlung während des Imprägnierens  
erreicht werden. Nach Imprägnieren des Kohlefaserpapiers werden die ver-  
20 bliebenen Netzmittel aus der Dispersion thermisch zerstört. Typischerweise  
werden dabei Temperaturen zwischen 300 und 400°C kurzzeitig angewandt.

- Die fertige Schicht ist extrem hydrophob. Sie enthält für den Anwendungsfall  
einer kathodenseitigen Diffusionsstruktur einer bei Umgebungsdruck und  
25 70°C Zelltemperatur mit Luftkühlung des Kathodenraums betriebenen PEM-  
Brennstoffzelle 45-75% Kunststoff. Die Leitfähigkeit der Schicht wird da-  
durch nur unwesentlich beeinflusst da innerhalb des Kohlefaserpapiers die  
leitfähigen Verbindungen zwischen den Kohlefasern nicht gelöst werden.  
Das zweite evtl. leicht hydrophobisierte Kohlefaserpapier wird mit dem er-  
30 sten verpresst oder beim Zusammenbau der Zelle nur beigelegt.

**Beispiel 3:**

5 Eine sehr gut elektrisch leitfähiges Schichtsystem, das einen geeigneten Gradienten im Diffusionswiderstand aufweist, kann auch durch Auftragen einer Mischung aus einem elektrisch leitfähigem Pulver und einem Binder auf ein Substrat mit geringen Diffusionswiderstand, z.B. ein Kohlefaserpapier erfolgen.

10 Speziell in diesem Beispiel wird ein hydrophobiertes Kohlefaserpapier mit 68% Porenvolumen und einer Dicke von 0.35mm verwendet. Allgemein können Kohlefaserpapiere mit den Spezifikationen aus Beispiel 1 verwendet werden. Auf dieses Substrat wird eine Dispersion aus Graphitpulver, THV (Fa. Dyneon) oder PTFE (z.B. Hostaflon TF 5032) in geeigneten wässrigen  
15 Dispersionsflüssigkeiten in ein oder mehreren Sprühgängen mit Zwischentrocknung aufgesprüht. Als Dispersionsflüssigkeiten dienen wässrige Tensidlösungen oder Mischungen aus Wasser und Alkoholen. Als elektrisch leitfähiges Pulver eignet sich bevorzugt Kohlenstoffpulver und besonders bevorzugt kugelförmige Kohlenstoffpartikel wie z.B. Mesocarbon Microbeads  
20 der Firma Osaka Gas, Japan.

Bevorzugt erfolgt das Sprühen auf einem Vakuumtisch, damit überschüssige Dispersionsflüssigkeit sofort abgesaugt wird. Nach dem letzten Trockenvorgang werden die Kunststoffpartikel bei erhöhter Temperatur gesintert und  
25 die Netzmittel zerstört. Der Anteil an Kunststoffbinder beträgt bevorzugt 5-50% von der Trockenmasse. Die flächenspezifische Masse der Schicht liegt bevorzugt zwischen 30 und 300 g/m<sup>2</sup> und besonders bevorzugt zwischen 60 und 120 g/m<sup>2</sup>. Nach dem Sintern wird das Substrat und die aufgebraachte Schicht bei bevorzugt 5 bis 100 bar und besonders bevorzugt bei 30  
30 bis 80 bar und erhöhter Temperatur verpresst.

Zum Ausgleich der Rauigkeiten des Kohlefaserpapiers auf der Membran bzw. Katalysator zugewandten Seite ist es sinnvoll eine sehr dünne Schicht aus einer Dispersion aus porösem Ruß (z.B. Vulcan XC 72 von Cabot) und polymeren Binder (z.B. PTFE) durch Sprühen evtl. auf dem Vakuumtisch aufzutragen, zu  
5 trocknen und anschließend zu sintern. Der Kunststoffanteil liegt wiederum bevorzugt zwischen 5 und 50%. Diese Schicht kann ebenfalls mit den oben angegebenen Drücken verpresst werden.

#### 10 **Beispiel 4:**

Als Variation von Beispiel 2 kann zur Imprägnierung des Kohlefaserpapiers anstatt des fluorierten Kunststoffes auch ein Gemisch aus elektrisch leitfähigen Partikeln und einem z.B. fluoriertem Kunststoff als Binder verwendet werden.  
15 Der Vorteil liegt in der etwas besseren elektrischen Leitfähigkeit der Gasdiffusionsstruktur.

Als elektrisch leitfähige Partikel eignen sich Graphit, Leitruß oder kurze Kohlfasern. Speziell in diesem Beispiel kann eine Suspension von 50g Wasser, 16,6g  
20 60% PTFE Suspension und 10g Graphit mit einer mittleren Partikelgröße von 15 µm zur Imprägnierung verwendet werden. Nach Erreichen der für den Verwendungszweck geeigneten Feststoffmasse (z.B. 2 – 10 mg/cm<sup>2</sup>) wird das Schichtmaterial zur Verfestigung der Struktur und zur thermischen Zersetzung von Dispersionshilfsstoffen gesintert. Der Imprägnievorgang kann mit zwischen-  
25 geschalteten Trocknungsschritten mehrmals wiederholt werden.

Ist ein Gradient in Diffusionswiderstand parallel zur Schichtfläche aufgrund des speziellen Anwendungsfalls gewünscht, so kann dieser einfach durch unterschiedliche Anzahlen von Imprägnierungsvorgängen an unterschiedlichen  
30 Teilflächen erreicht werden. Bevorzugt wird in diesem Fall das Imprägnieren von Teilflächen der Diffusionselektrode durch Aufsprühen und Eindringen lassen der Suspension nach Beispiel 2 oder 4 erreicht.

Der Gradient im Diffusionswiderstand senkrecht zur Schicht kann durch Beilegen eines weiteren Kohlefaserpapiers auf der Membran zu- oder auf der Membran abgewandten Seite erreicht werden.

- 5 Alternativ kann auch eine nach Beispiel 3 aufgebrachte Schicht aus hochporösem Ruß zu diesem Zweck dienen. Mögliche Auftragetechniken sind Sprühen, Rakeln, Walzen oder Siebdruck. Bevorzugt werden hierbei Feststoffbeladungen von  $0,4\text{mg/cm}^2$  -  $3,5\text{mg/cm}^2$  verwendet.

10

15

20

25

30

## Bezugszeichenliste

- 5    (1)    Stromableiterplatte
- (2)    Kanalstruktur zum Verteilen der Reaktionsgase
- (3)    Äußerer Teil der orthogonalen Gasdiffusionsstruktur
- (4)    Innerer Teil der orthogonalen Gasdiffusionsstruktur
- (5)    Katalysatoren enthaltende Elektrode
- 10   (6)    Polymerelektrolyt-Membran

15

## Patentansprüche

- 5 1. Poröse, elektrisch leitfähige Gasdiffusionsstruktur für Polymerelektrolyt-Membran Brennstoffzellen,  
**dadurch gekennzeichnet, daß**  
sie senkrecht zur Membran eine Struktur enthält, die mindestens in einem Teilbereich einen Gradienten in der Gasdurchlässigkeit aufweist.
- 10 2. Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 1  
**dadurch gekennzeichnet, daß**  
sie aus wenigstens zwei Teilstrukturen besteht.
- 15 3. Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 1 bis 2  
**dadurch gekennzeichnet, daß**  
die beiden Teilstrukturen eine unterschiedliche Gasdurchlässigkeit aufweisen.
- 20 4. Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 1 bis 3  
**dadurch gekennzeichnet, daß**  
25 die Teilstruktur, die sich näher an den Stromableiterplatten befindet, eine geringere Gasdurchlässigkeit aufweist als die Teilstruktur, die näher an der Membran liegt.
- 30 5. Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 4  
**dadurch gekennzeichnet, daß**



die Porenvolumendichte der Teilstruktur mit geringer Gasdurchlässigkeit kleiner ist als die Porenvolumendichte der Teilstruktur mit hoher Gasdurchlässigkeit.

5

6. Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 1 bis 5  
**dadurch gekennzeichnet, daß**  
mindestens eine Teilstruktur hydrophob ist.

10

7. Verfahren zur Herstellung einer porösen, elektrisch leitfähigen Gasdiffusionsstruktur für Polymerelektrolyt-Membran Brennstoffzellen  
**dadurch gekennzeichnet, daß**  
senkrecht zur Membran eine Struktur hergestellt wird, die mindestens in einem Teilbereich einen Gradienten in der Gasdurchlässigkeit aufweist.

15

8. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 7  
**dadurch gekennzeichnet, daß**  
sie aus wenigstens zwei Teilstrukturen hergestellt wird.

20

9. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 8  
**dadurch gekennzeichnet, daß**  
die Teilstrukturen eine unterschiedliche Gasdurchlässigkeit aufweisen.

25

10. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 9  
**dadurch gekennzeichnet, daß**

30

in der Teilstruktur, die sich näher an den Stromableiterplatten befindet, eine geringere Gasdurchlässigkeit erzeugt wird als in der Teilstruktur, die näher an der Membran liegt.

5

11. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 10

**dadurch gekennzeichnet, daß**

10 in der Teilstruktur mit geringer Gasdurchlässigkeit eine kleinere Porenvolumendichte erzeugt wird als in der Teilstruktur mit hoher Gasdurchlässigkeit.

12. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 11

15 **dadurch gekennzeichnet, daß**

mindestens eine Teilstruktur hydrophobiert wird.

20

13. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 12

**dadurch gekennzeichnet, daß**

daß wenigstens ein Kohlfaserpapier verwendet wird.

25

14. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 13

**dadurch gekennzeichnet, daß**

zur Erreichung einer geringen Gasdurchlässigkeit eine Teils des Kohlefaserpapiers die Poren nahe einer Oberfläche teilweise verschlossen werden.

30

15. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 13 bis 14

**dadurch gekennzeichnet, daß**

zum teilweise Verschließen der Poren ein Thermoplast verwendet wird.

- 5 16. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 13 bis 15

**dadurch gekennzeichnet, daß**

eine Folie unter Druck und erhöhter Temperatur auf eine Oberfläche des Kohlefaserpapiers aufgebracht wird.

10

17. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 12

**dadurch gekennzeichnet, daß**

- 15 zum teilweise Verschließen der Poren eine Suspension aus Kunststoffpartikeln verwendet wird.

18. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 17

20 **dadurch gekennzeichnet, daß**

die Suspension durch Tränken und Trocknen in das Kohlefaserpapier eingebracht wird.

- 25 19. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 12

**dadurch gekennzeichnet, daß**

- zur Erreichung einer geringen Gasdurchlässigkeit an einer Oberfläche des Kohlfaserpapiers eine weitere Schicht aus elektrisch leitfähigen Partikeln  
30 und Binderpartikeln aufgebracht wird.

20. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 19

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Schicht durch Sprühen einer Suspension aus Binderpartikeln und elektrisch leitfähigen Partikeln und anschließendem Trocknen und evtl. Sintern hergestellt wird.

5

21. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 19 bis 20

**dadurch gekennzeichnet, daß**

als Binder ein fluorierter Kunststoff verwendet wird.

10

22. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 19 bis 21

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die elektrisch leitfähigen Partikel aus Kohlenstoff bestehen.

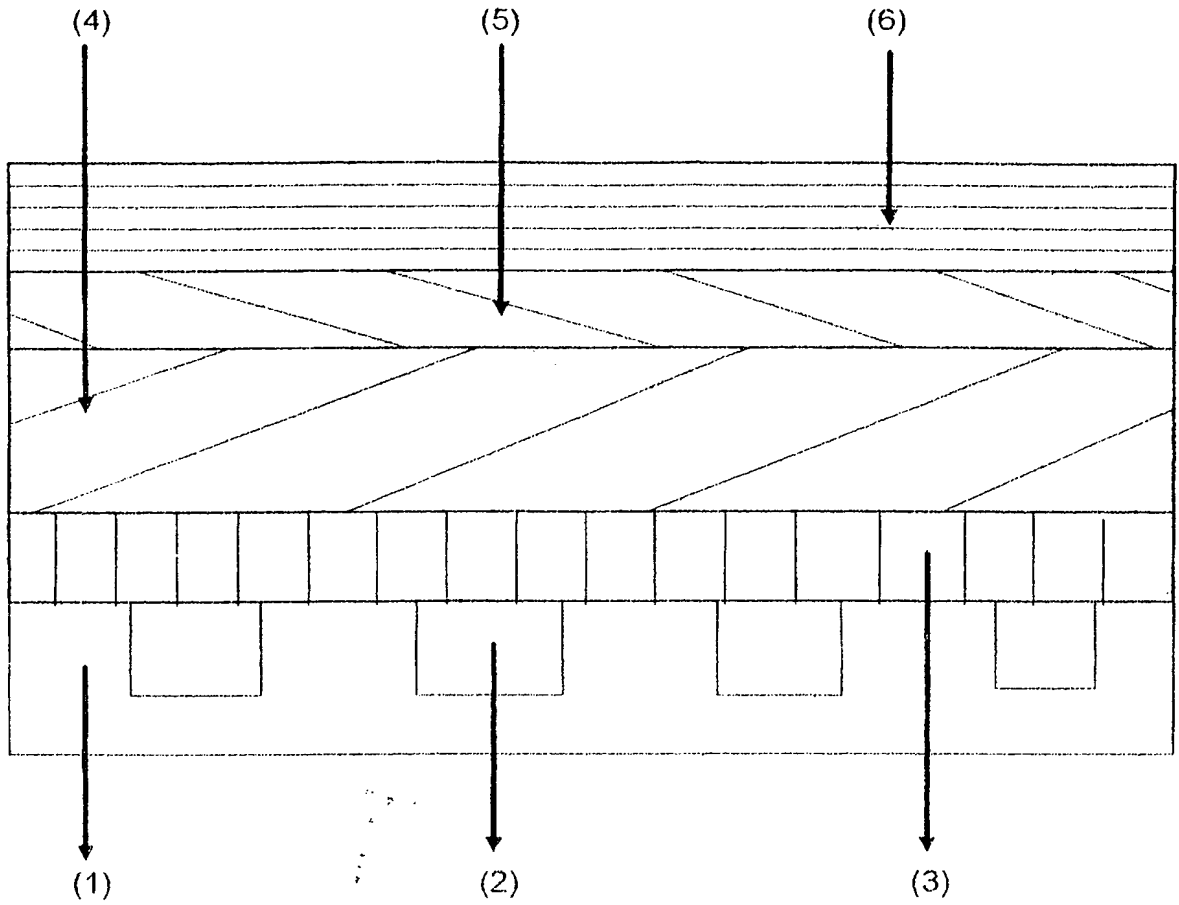
15

23. Verwendung der porösen, elektrisch leitfähigen Gasdiffusionsstruktur als Anode und/oder Kathode in Polymerelektrolyt-Membran Brennstoffzellen.

20

25

30





**PCT**  
 WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
 Internationales Büro  
 INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
 INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)



<p>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> : <b>H01M 8/10, 4/86, 8/02</b></p>	<b>A3</b>	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 00/14816</b></p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 16. März 2000 (16.03.00)</p>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE99/02776</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 2. September 1999 (02.09.99)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 198 40 517.0      4. September 1998 (04.09.98)      DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): KOSCHANY, Petra [DE/DE]; Pfarrweg 5, D-94121 Salzweg (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): ROSENMAYER, Volker [DE/DE]; Gaisbergstrasse 32, D-83416 Saaldorf-Surheim (DE).</p>		<p>(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i></p> <p>(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 10. August 2000 (10.08.00)</p>
<p>(54) Title: GAS DIFFUSION STRUCTURE PERPENDICULAR TO THE MEMBRANE OF POLYMER-ELECTROLYTE MEMBRANE FUEL CELLS</p>		
<p>(54) Bezeichnung: GASDIFFUSIONSSTRUKTUR SENKRECHT ZUR MEMBRAN VON POLYMERELEKTROLYT-MEMBRAN BRENNSTOFFZELLEN</p>		
<p>(57) Abstract</p> <p>With the gas diffusion structure, a gradient is produced in gas permeability perpendicular to the membrane (6) by a stratified system (3, 4). This guarantees constant and optimal humidification in all points of the membrane by the formed product water at appropriate operating temperature and appropriate stoichiometry of the reactants. Additional humidification systems can thus be discarded.</p>		
<p>(57) Zusammenfassung</p> <p>Mit der Gasdiffusionsstruktur wird durch Schichtaufbau (3, 4) ein Gradient in der Gasdurchlässigkeit senkrecht zur Membran (6) erzeugt. Dadurch wird bei geeigneter Betriebstemperatur und geeigneter Stoichiometrie der Reaktanden gewährleistet, dass die Befeuchtung der Membran durch das gebildete Produktwasser an jeder Stelle konstant und optimal ist. Somit kann auf zusätzliche Befeuchtungssysteme verzichtet werden.</p>		

# **LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidsschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/DE 99/02776

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H01M8/10 H01M4/86 H01M8/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO 98 39809 A (MAGNET MOTOR GMBH ; KOSCHANY ARTHUR (DE); LUCAS CHRISTIAN (DE); SCH) 11 September 1998 (1998-09-11) claims 1, 35-11, 17, 20, 21; figures 1, 2 page 6, last paragraph - page 9, paragraph 1; example 2	11-14, 17-19, 21-23
X	WO 97 13287 A (DOW CHEMICAL CO) 10 April 1997 (1997-04-10)  claims 37-39, 49-51 page 10, line 32 - page 11, line 17; figure 8 page 12, line 1 - line 21 page 14, line 35 - line 37  -/-	1-3, 6-9, 11-14, 19, 21-23

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"A" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

16 March 2000

Date of mailing of the international search report

27/03/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

D'hondt, J

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Application No.

PCT/DE 99/02776

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 620 807 A (SCORTICHINI CAREY L ET AL) 15 April 1997 (1997-04-15)  column 2, line 54 -column 3, line 12; claims 1-3 column 3, line 43 -column 4, line 30 column 6, line 9 - line 13	1,2,4, 6-9, 11-14, 19,21-23
A	EP 0 560 295 A (HITACHI LTD) 15 September 1993 (1993-09-15) claim 1 page 4, line 4 - line 6 page 4, line 41 -page 5, line 6 page 5, line 20 - line 36; figure 5 page 6, line 10 - line 19	1,4-7, 10-12,23
A	US 5 641 586 A (WILSON MAHLON S) 24 June 1997 (1997-06-24) cited in the application column 3, line 26 - line 40; figure 1B	1
A	US 4 804 592 A (VANDERBORGH NICHOLAS E ET AL) 14 February 1989 (1989-02-14) claims 1,3 column 8, line 62 -column 9, line 9	1,6,7, 12,23
A	WO 97 20359 A (MAGNET MOTOR GMBH ;KOSCHANY ARTHUR (DE); LUCAS CHRISTIAN (DE); SCH) 5 June 1997 (1997-06-05)	

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 99/02776

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9839809 A	11-09-1998	DE 19709199 A	17-09-1998
		AU 6828798 A	22-09-1998
		EP 0968542 A	05-01-2000
WO 9713287 A	10-04-1997	US 5702755 A	30-12-1997
		AU 713035 B	18-11-1999
		AU 7389096 A	28-04-1997
		CA 2233575 A	10-04-1997
		CN 1201554 A	09-12-1998
		EP 0853824 A	22-07-1998
		JP 10513006 T	08-12-1998
		US 5869416 A	09-02-1999
		US 5882810 A	16-03-1999
US 5620807 A	15-04-1997	NONE	
EP 0560295 A	15-09-1993	JP 5251086 A	28-09-1993
		DE 69302931 D	11-07-1996
		DE 69302931 T	10-10-1996
		US 5500292 A	19-03-1996
US 5641586 A	24-06-1997	NONE	
US 4804592 A	14-02-1989	CA 1307819 A	22-09-1992
		DE 3835336 A	27-04-1989
		JP 1143151 A	05-06-1989
WO 9720359 A	05-06-1997	DE 19544323 A	05-06-1997
		AU 712037 B	28-10-1999
		AU 1094997 A	19-06-1997
		BR 9611769 A	23-02-1999
		BR 9611783 A	23-02-1999
		CA 2238738 A	05-06-1997
		CA 2238945 A	05-06-1997
		CN 1202984 A	23-12-1998
		WO 9720358 A	05-06-1997
		EP 0867048 A	30-09-1998
		EP 0864183 A	16-09-1998
		US 5998057 A	07-12-1999

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationale Abkürzungen

PCT/DE 99/02776

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 H01M8/10 H01M4/86 H01M8/02

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P, X	WO 98 39809 A (MAGNET MOTOR GMBH ;KOSCHANY ARTHUR (DE); LUCAS CHRISTIAN (DE); SCH) 11. September 1998 (1998-09-11) Ansprüche 1,35-11,17,20,21; Abbildungen 1,2 Seite 6, letzter Absatz -Seite 9, Absatz 1; Beispiel 2	11-14, 17-19, 21-23
X	WO 97 13287 A (DOW CHEMICAL CO) 10. April 1997 (1997-04-10)  Ansprüche 37-39,49-51 Seite 10, Zeile 32 -Seite 11, Zeile 17; Abbildung 8 Seite 12, Zeile 1 - Zeile 21 Seite 14, Zeile 35 - Zeile 37  -/-	1-3,6-9, 11-14, 19,21-23

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindeterischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindeterischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

16. März 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

27/03/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGEBEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	<p>US 5 620 807 A (SCORTICHINI CAREY L ET AL) 15. April 1997 (1997-04-15)</p> <p>Spalte 2, Zeile 54 -Spalte 3, Zeile 12; Ansprüche 1-3 Spalte 3, Zeile 43 -Spalte 4, Zeile 30 Spalte 6, Zeile 9 - Zeile 13</p>	1,2,4, 6-9, 11-14, 19,21-23
A	<p>EP 0 560 295 A (HITACHI LTD) 15. September 1993 (1993-09-15) Anspruch 1 Seite 4, Zeile 4 - Zeile 6 Seite 4, Zeile 41 -Seite 5, Zeile 6 Seite 5, Zeile 20 - Zeile 36; Abbildung 5 Seite 6, Zeile 10 - Zeile 19</p>	1,4-7, 10-12,23
A	<p>US 5 641 586 A (WILSON MAHLON S) 24. Juni 1997 (1997-06-24) in der Anmeldung erwähnt Spalte 3, Zeile 26 - Zeile 40; Abbildung 1B</p>	1
A	<p>US 4 804 592 A (VANDERBORGH NICHOLAS E ET AL) 14. Februar 1989 (1989-02-14) Ansprüche 1,3 Spalte 8, Zeile 62 -Spalte 9, Zeile 9</p>	1,6,7, 12,23
A	<p>WO 97 20359 A (MAGNET MOTOR GMBH ;KOSCHANY ARTHUR (DE); LUCAS CHRISTIAN (DE); SCH) 5. Juni 1997 (1997-06-05)</p>	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/02776

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9839809 A	11-09-1998	DE 19709199 A AU 6828798 A EP 0968542 A	17-09-1998 22-09-1998 05-01-2000
WO 9713287 A	10-04-1997	US 5702755 A AU 713035 B AU 7389096 A CA 2233575 A CN 1201554 A EP 0853824 A JP 10513006 T US 5869416 A US 5882810 A	30-12-1997 18-11-1999 28-04-1997 10-04-1997 09-12-1998 22-07-1998 08-12-1998 09-02-1999 16-03-1999
US 5620807 A	15-04-1997	KEINE	
EP 0560295 A	15-09-1993	JP 5251086 A DE 69302931 D DE 69302931 T US 5500292 A	28-09-1993 11-07-1996 10-10-1996 19-03-1996
US 5641586 A	24-06-1997	KEINE	
US 4804592 A	14-02-1989	CA 1307819 A DE 3835336 A JP 1143151 A	22-09-1992 27-04-1989 05-06-1989
WO 9720359 A	05-06-1997	DE 19544323 A AU 712037 B AU 1094997 A BR 9611769 A BR 9611783 A CA 2238738 A CA 2238945 A CN 1202984 A WO 9720358 A EP 0867048 A EP 0864183 A US 5998057 A	05-06-1997 28-10-1999 19-06-1997 23-02-1999 23-02-1999 05-06-1997 05-06-1997 23-12-1998 05-06-1997 30-09-1998 16-09-1998 07-12-1999